

B5957PCT/US

English translation of claim 1 of document DE 22 58 305

---

1. Method of manufacturing compact elements having an homogeneous structure from hard material powder or mixes of hard material powders, using pressure sintering or reactive pressure sintering, in which the powder is pressed and sintered at high temperature in a graphite matrix with at least a graphite guiding piston, characterized in that the powder or the mix of powders to be compacted is set, before the pressing and sintering process, in a disposebal casing fitting into the matrix.

51

Int. Cl.:

B 22 f, 3/14

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT

52



Deutsche Kl.: 31 b3, 3/14

50

# Offenlegungsschrift 2 258 305

51

Aktenzeichen: P 22 58 305.7

52

Anmeldetag: 29. November 1972

53

Offenlegungstag: 30. Mai 1974

Ausstellungsriorität: —

54

Unionspriorität

55

Datum: —

56

Land: —

57

Aktenzeichen: —

58

Bezeichnung: Verfahren und Einrichtung zum Herstellen von Formkörpern aus Hartstoffpulvern

59

Zusatz zu: —

60

Ausscheidung aus: —

61

Anmelder: Gesellschaft für Kernforschung mbH, 7500 Karlsruhe

Vertreter gem. § 16 PatG: —

62

Als Erfinder benannt: Thümmler, Fritz, Prof. Dr., 7501 Wettersbach; Brundiers, Gerd, Dipl.-Phys., 7521 Karlsdorf; Politis, Constantin, 7500 Karlsruhe

DT 2258 305

Verfahren und Einrichtung zum Herstellen von Formkörpern aus Hartstoffpulvern.

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Herstellen von dichten, in ihrer Struktur homogenen Formkörpern aus Hartstoff-Pulvern oder Hartstoffpulver-Gemischen durch Drucksintern oder Reaktionsdrucksintern, bei welchem das Pulver in einer Graphit-Matrize mit mindestens einem Graphit-Führungsstempel bei erhöhter Temperatur gepreßt und gesintert wird und eine Einrichtung zur Durchführung des Verfahrens. Die Begriffe Hartstoff-Pulver und Hartstoffpulver-Gemische stehen hier für Pulver bzw. Pulvergemische aus hochschmelzenden Stoffen, beispielsweise aus Hartmetallen, Hartmetallen mit Bindemetallen, Legierungen, Nitriden, Karbiden, Oxiden, Mischkristallen aus den genannten Verbindungen und Verbundkörpern.

Es ist bekannt, Formkörper aus Hartstoff-Pulvern mittels Reaktionsdrucksinter-Verfahren in Graphit-Preßwerkzeugen mit entsprechenden Heizvorrichtungen herzustellen. Hierbei können jedoch bei den angewandten hohen Drücken bzw. hohen Temperaturen Reaktionen zwischen der Innenwand der

Matrize oder zwischen den Druckstempeln und den Pulvern nicht vermieden werden, so daß durch die Ausbildung starker Diffusionszonen u. U. ein Verkleben der gepreßten Pulverproben bzw. der hergestellten Formkörper mit den Preßwerkzeugen stattfindet. Das Ausformen der Preßlinge ist dann mit erheblichen Schwierigkeiten und mit verhältnismäßig hohem Zeitaufwand verbunden. Außerdem ist der Ausschuß an beim Ausformen beschädigten Preßlingen groß.

Aufgabe der Erfindung ist es daher, die Nachteile der bekannten Verfahren zum Herstellen von Formkörpern aus Hartstoff-Pulvern mittels Drucksintern oder Reaktionsdrucksintern zu vermeiden und ein Verfahren zu schaffen, mit welchem dichte und homogene Formkörper, frei von Makro- und Mikro-Rissen, hergestellt werden können, und das selbst bei Anwendung geeigneter Temperatur-Druck-Programme mit Maximal-Temperaturen bis zu  $3000^{\circ}\text{C}$  und Maximal-Drücken bis zu  $550 \text{ kp/cm}^2$  ein rasches, die Matrize und die Preßlinge schonendes Ausformen der Preßlinge gewährleistet. Außerdem sollen die Matrize und der (die) Führungsstempel wieder verwendet werden können.

Die Aufgabe wird durch die Erfindung in überraschend einfacher Weise dadurch gelöst, daß das zu verdichtende Pulver oder Pulvergemisch vor dem Preß- und Sintervorgang in einen verschleißbaren, in die Matrize einpaßbaren Einsatz eingebracht wird. In einer vorteilhaften Ausbildung der Erfindung wird zunächst der Einsatz in die Matrize auswechselbar eingebracht und danach das zu verdichtende Pulver oder Pulvergemisch in den Einsatz in loser Schüttung oder unter schwachem Vordruck eingebracht. Nach einer weiteren Ausbildung der Erfindung wird das zu verdichtende Pulver oder Pulvergemisch zunächst in loser Schüttung oder unter schwachem Druck vorgepreßt in dem Einsatz gasdurchlässig verpackt und danach der Einsatz mit dem Pulver in die Matrize wieder entnehmbar eingesetzt.

Die erfindungsgemäße Einrichtung zur Durchführung des Verfahrens ist dadurch gekennzeichnet, daß der in die Matrize einpaßbare Einsatz aus einem äußeren Mantel, bestehend aus einer oder mehreren dünnen Graphit-Folien, einem inneren Mantel, bestehend aus einer oder mehreren dünnen Graphit- und/oder Metall-Folien und/oder einem Hartstoff-Zylinder, mindestens einem innerhalb des äußeren Mantels verschiebbaren Druckübertragungsstempel aus Graphit und zwei dünnen Graphit-Stirnfolien besteht.

In einer vorteilhaften Ausbildung der Einrichtung ist zwischen dem äußeren Mantel und der Matrize ein Graphitrohr angeordnet. Eine Weiterbildung der erfindungsgemäßen Einrichtung ist dadurch gekennzeichnet, daß der äußere Mantel an seinen Rändern zur Entgasung des Pulvers bzw. zur Entfernung von Feuchtigkeit und/oder Verunreinigungen aus dem Pulver Kerben oder Schlitze und die Stirnfolien Einschnitte aufweisen, und daß die Kerben oder Schlitze und die Einschnitte dreimal, jeweils um einen Winkel von 120 Grad versetzt angeordnet sind und die Kerben oder Schlitze etwa bis zur Höhe des inneren Mantels ausgebildet sind.

Die Erfindung wirkt sich besonders vorteilhaft dort aus, wo aus hochschmelzenden Hartstoffpulvern größere Stückzahlen eines Formkörpers hergestellt werden. Die Erfindung ermöglicht es, die Ausschußzahlen an Formkörpern weitgehend zu verringern, die Herstellungszeit durch rasches Ausformen zu verkürzen und hierdurch die Herstellungskosten zu verringern. Die Pulvercharge können unabhängig von der Bereitstellung einer Matrize vorbereitet werden. Das Pulver kommt nicht mit der Innenwand der Matrize in Berührung. Die anisotropen Eigenschaften des Einsatzes aus Graphit-Folie vermindern die Wandreibung zwischen Einsatz und Innenwand der Matrize, verringern hierdurch das Eindiffundieren von Kohlenstoff in den Formkörper und damit ein Aufkarburieren seiner Oberfläche, verhindern das Verkleben der Formkörper mit der Matrize durch Ausbildung starker Diffusionszonen und vermeiden ein Zerreissen der Formkörper nach dem Preß- und Sintervorgang wegen unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten. Zusätzlich im inneren Mantel verwendete Metalle oder Hartstoffe erhöhen einige dieser Vorteile.

409822/0633

2258305

Die Erfindung ist in vorteilhafter Weise anwendbar zur Herstellung von Formkörpern aus Nitriden oder Karbiden des Hafniums, des Titans, des Zirkoniums, des Vanadiums, des Niobs, des Tantals, des Chroms, des Molybdäns, des Wolframs, des Urans, des Bors, des Siliziums, sowie aus anderen hochschmelzenden Materialien, beispielsweise Graphit-Verbundkörpern.

Beispiel 1:

Etwa 30 g eines Hartstoffpulver-Gemisches, bestehend aus 45 Gew.-% Hafniumcarbid, 30 Gew.-% Hafniumnitrid und 25 Gew.-% Hafnium-Metall von einer jeweiligen Teilchengröße von größenordnungsmäßig -325mesh (weniger als 44 Mikrometer), werden zur Herstellung eines zylinderförmigen Sinterkörpers gut gemischt in einen Matrizeneinsatz eingebracht, der zusammengesetzt ist aus einem inneren Mantel aus zwei bis drei Lagen Graphit-Folien, etwa 11 mm hoch mit einer lichten Weite von ca. 26,5 mm, einem äußeren Mantel aus vier bis fünf Lagen jeweils etwa 0,2 mm starken Graphit-Folien, etwa 20 mm hoch mit einem äußeren Durchmesser von ungefähr 29,5 bis 30 mm, und zwei jeweils mit einer dünnen Graphit-Stirnfolie gegen das Hartstoffpulver geschützten Druckübertragungsstempel aus Graphit mit einer Höhe von ca. 10 mm und einem Durchmesser von ca. 27,5 mm, die sich innerhalb des äußeren Mantels verschieben lassen. Der Einsatz wird mit dem Pulver in einer Graphit-Matrize, in die ein Graphitrohr von einer Wandstärke von ca. 5 mm und einer lichten Weite von 30 mm eingepaßt ist, eingeführt und die Führungsstempel eingesetzt. Nach dem Einformen wird im Vakuum entgast und ohne Druckaufgabe auf die Führungsstempel in etwa zehn Minuten auf 2250°C aufgeheizt. Darauf wird das Vakuum entfernt, indem ein Schutzgas, beispielsweise Argon, eingelassen wird. Innerhalb von etwa einer Minute wird auf die Führungsstempel ein Druck von 500 kp/cm<sup>2</sup> aufgegeben und danach die Temperatur in ca. drei Minuten auf 2500°C erhöht. Diese Bedingungen werden 15 Minuten lang eingehalten. Nach dem Abkühlen und Entformen erhält man einen Formkörper von 95 bis 100 % der Theoretischen Dichte.

Beispiel 2:

Etwa 80g Hafniumcarbid-Pulver einer Teilchengröße von -400 mesh (weniger als 37  $\mu\text{m}$ ) wird in einen der Pulvermenge in seinen Ausmaßen angepaßten Einsatz eingeführt und im Vakuum entgast und aufgeheizt. Unter Beibehaltung des Vakuums wird auf die Führungsstempel ein Druck von 550 kp/cm<sup>2</sup> aufgegeben und auf 2900°C weiter aufgeheizt. Die Haltezeit bis zum Beginn des Abkühlens beträgt in diesem Falle 20 Minuten.

Beispiel 3:

40 g eines Gemisches aus Hafniumcarbid und etwa 0,3 Gew.-% Eisenpulver als Bindemetall werden nach den Druck- und Sinterbedingungen aus Beispiel 2 gepreßt.

Die Erfindung ist auf die hier angeführten Beispiele nicht beschränkt, es können ebenfalls unter evtl. Variierung von Druck- und Temperaturbedingungen mit oder ohne Schutzgas und mit oder ohne Bindemetall Formkörper aus Nitriden und/oder Karbiden des Titans, Zirkoniums, Vanadiums, Niobs, Tantals, Chroms, Molybdäns, Wolframs, Urans, Bors oder Siliziums hergestellt werden.

Im folgenden wird die erfindungsgemäße Einrichtung anhand der Zeichnungen erläutert. Die Figuren 1 bis 3 stellen jedoch keine Einschränkung der Erfindung dar, sondern sind lediglich ein Ausführungsbeispiel.

Figur 1 zeigt eine Graphit-Matrize 1 mit eingepaßtem Graphit-Rohr 8, in welches von oben und unten her jeweils ein darin verschiebbarer Führungsstempel 2 (nur teilweise dargestellt) eingeführt ist. Zwischen dem Graphitrohr 8 und den beiden Führungsstempeln 2 ist der mit Hartstoffpulver 3 versehene Einsatz, bestehend aus einem äußeren Mantel 4, einem inneren Mantel 5, zwei Druckübertragungsstempeln 6 und zwei Stirnschichten 7 im Zustand vor dem Pressen dargestellt.

**Figur 2 zeigt den äußenen Mantel 4, der drei jeweils um einen Winkel von 120 Grad versetzte Kerben 9 an seinen Rändern aufweist.**

**Aus Figur 3 geht die Form der im wesentlichen kreisflächenförmigen Stirnfolien 7 mit drei Einschnitten 10, die jeweils um einen Winkel von 120 Grad versetzt sind, hervor.**

Patentansprüche:

1. Verfahren zum Herstellen von dichten, in ihrer Struktur homogenen Formkörpern aus Hartstoff-Pulvern oder Hartstoffpulver-Gemischen durch Drucksintern oder Reaktionsdrucksintern, bei welchem das Pulver in einer Graphit-Matrize mit mindestens einem Graphit-Führungsstempel bei erhöhter Temperatur gepreßt und gesintert wird, dadurch gekennzeichnet, daß das zu verdichtende Pulver oder Pulvergemisch vor dem Preß- und Sintervorgang in einen verschleißbaren, in die Matrize einpaßbaren Einsatz eingebracht wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zunächst der Einsatz in die Matrize auswechselbar eingepaßt wird und danach das zu verdichtende Pulver oder Pulvergemisch in den Einsatz in loser Schüttung oder unter schwachem Vordruck eingebracht wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das zu verdichtende Pulver oder Pulvergemisch zunächst in loser Schüttung oder unter schwachem Druck vorgepreßt in dem Einsatz gasdurchlässig verpackt wird und danach der Einsatz mit dem Pulver in die Matrize wieder entnehmbar eingesetzt wird.
4. Einrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der in die Matrize (1) einpaßbare Einsatz aus einem äußeren Mantel (4), bestehend aus einer oder mehreren dünnen Graphit-Folien, einem inneren Mantel (5), bestehend aus einer oder mehreren dünnen Graphit- und/oder Metall-Folien und/oder einem Hartstoff-Zylinder, mindestens einem innerhalb des äußeren Mantels (4) verschiebbaren Druckübertragungsstempel (6) aus Graphit und zwei dünnen Graphit-Stirnfolien (7) besteht.

5. Einrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen dem äußeren Mantel (4) und der Matrize (1) ein Graphitrohr (8) angeordnet ist.
6. Einrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der äußere Mantel (4) an seinen Rändern zur Entgasung des Pulvers (3) bzw. zur Entfernung von Feuchtigkeit und/oder Verunreinigungen aus dem Pulver (3) Kerben oder Schlitze (9) und die Stirnfolien (7) Einschnitte (10) aufweisen.
7. Einrichtung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Kerben oder Schlitze (9) und die Einschnitte (10) drei mal jeweils um einen Winkel von 120 Grad versetzt angeordnet sind und die Kerben oder Schlitze (9) etwa bis zur Höhe des inneren Mantels (5) ausgebildet sind.

2258305

-9.

Fig.1

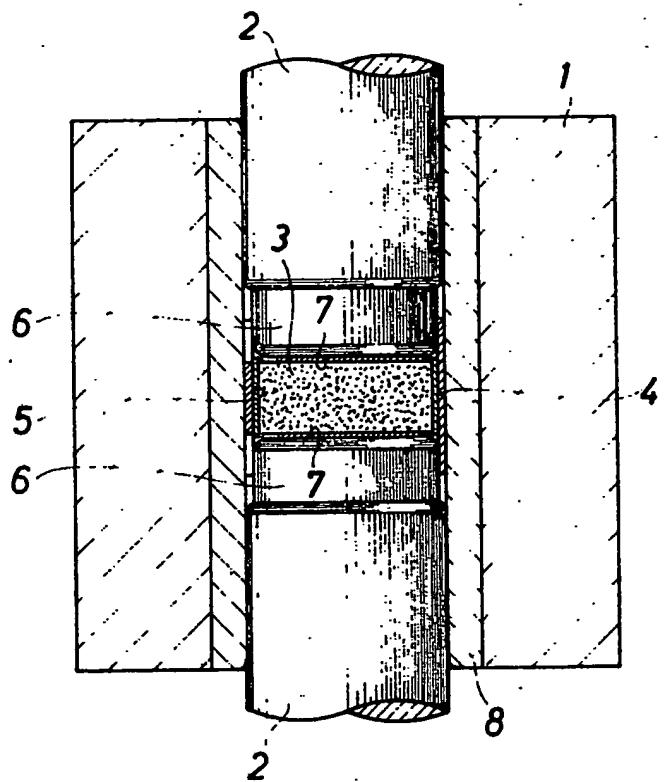


Fig.2

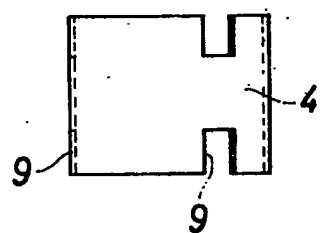
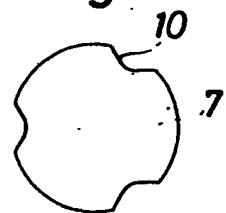


Fig.3



409822/0633

21h3 3-14 AT:22.11.1972 OT:30.05.1974